文章编号：　XXX-XXX(2024) XX-XXX-XX

低能 N^+-He 碰撞中的态选择单电子俘获研究

邢大地[1,2]，崔述成[1,2]，朱小龙[2,3]，张登红[1]，张少锋[2,3]，马新文[2,3]

(1. 甘肃省原子分子物理与功能材料重点实验室，西北师范大学物理与电子学院，兰州 730070；
2. 中国科学院近代物理研究所，兰州 730000；
3. 中国科学院大学，北京 100049)

摘要：利用反应显微成像谱仪，采用二重符合方法，实验测量了 0.64 keV/u N^+ 与 He 单电子俘获产生的反冲离子 He^+ 三维动量，获得了电子俘获到炮弹离子不同量子态的态选择截面和角分布。实验结果表明：基态的炮弹离子 $N^+(1s^22s^22p^2\ {}^3P)$ 俘获 He 靶的一个 1s 电子主要布居到 2p 壳层，也可以看到布居到更高壳层的贡献；亚稳态的炮弹离子 $N^+(1s^22s2p^3\ {}^5S)$ 俘获 He 靶的一个 1s 电子主要布居到 2s 壳层，几乎看不到布居到更高壳层的贡献。利用 NHe^+ 准分子离子的势能曲线定性地解释了实验结果，但分子库仑过垒模型的反应窗预测与实验存在较大差别。在亚稳态炮弹离子 $N^+(1s^22s2p^3\ {}^5S)$ 俘获靶电子到 2s 轨道的过程中，角微分截面出现了明显的振荡结构，这很可能来自 Demkov 型跃迁。

关键词：单电子俘获；态选择截面；角微分截面；亚稳态；离子原子碰撞

中图分类号：O562.5　　**文献标志码：**X　　**DOI：**XXX

1　引言

离子与原子碰撞中电子俘获过程的研究不仅对于基本的原子结构和碰撞动力学理论的发展非常重要，而且在天体物理和等离子体物理等领域也有广泛的应用。例如，从应用的角度看，在很多星云中都发现了 N 原子的退激谱线，并且引起了相关理论研究的广泛关注[1-3]。这些处于激发态的 N 原子可能来自低能离子与原子间的碰撞激发，辐射重复合，电荷交换等过程。实验上开展低能 N^+ 离子的电子俘获 (电荷交换) 研究可以为理论完善提供重要依据[4]。

早在 1977 年，Vujovic 团队[5] 就通过束流衰减技术[6] 把参与 N^+-He 俘获反应的基态和亚稳态入射离子 (后面统一称作炮弹) 分开，获得了纯度较高（误差在 10% 范围内）的基态炮弹和 3 种亚稳态炮弹，并在此基础上测量了与 He 原子靶碰撞中的单电子俘获截面；根据准分子理论分析了实验结果，他们发现亚稳态炮弹与 He 靶单俘获反应中 $N^+({}^5S)$ 态是占主导的。为了探究亚稳态炮弹和不同靶发生俘获过程的散射截面，Moran 等人[7] 开展了 1-3 keV 的 $N^+({}^3P)$ 和 $N^+({}^1D)$ 同各种中性分子气体靶碰撞的电子俘获总截面的研究。他们发现亚稳态炮弹对不同靶的俘获截面的影响是普遍存在的，即靶电子被炮弹俘获的几率与炮弹的内能相关。之后，Nutt 团队[8] 测量了 0.1-13 keV 基态 C^+、N^+ 和 O^+ 离子与原子氢和氢气分子碰撞中的单电子俘获截面。McAfee 团队[9] 研究了 $N^+({}^1S)$ 和 $N^+({}^5S)$ 离子与氮气靶碰撞的单电子俘获过程。Toshio Kusakabe 团队[10] 通过控制电子碰撞能量来获得纯度较高的基态炮弹，报道了 1-3 keV 基态纯度较高的 C^+、N^+ 和 O^+ 炮弹与 He 原子碰撞的单电子俘获研究，系统地研究了不同种类炮弹对单俘获截面的影响。尽管在实验上普遍观测到了俘获截面与炮弹内能的依赖关系[7]，但是相关机制仍然没有一个很好的解释。为了在理论方面给出相关解释，Kimura 团队[11] 利用精度更高的半经典紧耦合模型进行计算，给出了单电子俘获态选择截面随碰撞能量的变化，其中 $N^+({}^3P)$ 和 $N^+({}^5S)$ 炮弹俘获靶电子到基态的截面和 Vujovic 团队得到的单电子俘获总截面结果符合的较好。在 N^+ 离子与 He 的碰撞中，他们发现随碰撞能量增加，N^+ 的基态和亚稳态炮弹的俘获截面，在大约 0.4 keV/u 亚稳态炮弹俘获截面超过基态炮弹。上述工作主要聚焦在单电子俘获总截面的研究，迄今为止，没有低能 N^+ 离子与 He 碰撞中态分辨的单电子俘获实验报导。在本工作中，利用近代物理研究所的 EBIS 超低能重离子实验平台[12-13] 提供的 0.64 keV/u N^+ 炮弹 (炮弹可能处于基态和亚稳态)，基于反应显微成像谱仪[12-13] 开展了 N^+ 和 He 碰撞过程中态选择电子俘

收稿日期：2024-XX-XX；　**修改日期：**2024-xx-xx
基金项目：国家自然科学基金资助项目 (11974358, 11934004)；国家重点研究发展计划项目 (2022YFA1602500)；中国科学院战略先导科技专项 (XDB34020000)
作者简介：邢大地 (2000–)，男，河南周口人，硕士研究生，从事原子与分子物理研究；E-mail: 2021212331@nwnu.edu.cn
通信作者：E-mail: zhuxiaolong@imp.ac.cn
通信作者：E-mail: zhangdh@nwnu.edu.cn

获过程的研究，获得了俘获电子布居到炮弹基态能级和更高激发态能级的态选择截面以及角微分截面，并对碰撞过程中的相关电荷转移机制进行了探究。

2 实验装置

图1给出了实验装置示意图，前面的文章[12-13] 已经详细地对其描述过，下面简短地对其进行介绍。离子从电子束离子源 (EBIS-A) 中产生并被引出，然后经维恩速度选择器 (Wien-filter) 筛选得到 N^+ 离子，接着经高压平台加速到 0.64 keV/u，经过聚焦透镜和静电偏转板校准通过狭缝准直后进入碰撞靶室。进入碰撞靶室的 N^+ 离子与向 Y 反方向喷射的超音速氦原子靶交叉碰撞，电子俘获反应产生的反冲离子由垂直于束流方向的横向电场 (~3.7 V/cm) 从碰撞区域内引出，经过飞行时间质谱 (TOF spectrometer) 系统最终由延迟线阳极二维位置灵敏探测器探测。谱仪的加速区和漂移区长度分别为 107.5 mm 和 215 mm，满足 1：2 的一维时间聚焦条件。俘获反应产生的中性氮原子由位于束流下游的二维位置灵敏微通道板探测器收集，未参与俘获反应的炮弹离子经束流下游的电荷分析器偏转由法拉第筒 (FC) 收集。最后根据反冲离子的二维位置和飞行时间重构出反冲离子的三维动量。实验中定义束流方向为 Z 方向，沿 Z 方向的反冲离子动量称为纵向动量，与反应的能量损失 Q 相关，Q 值的定义是反应前后参与反应电子束缚能的变化，因此实验上得到的 Q 值谱就反映了炮弹俘获电子后所处的状态, 例如亚稳态炮弹 $N^+(1s^22s2p^3\ ^5S)$ 俘获 He 原子的 1s 电子到 2s 壳层对应的 Q 值为：(14.53-24.59+5.8) eV，其中 14.53 eV 为 N 原子的第一电离能，24.59 eV 为 He 原子的第一电离能，5.8 eV 为亚稳态 $N^+(1s^22s2p^3\ ^5S)$ 相对于基态 N^+ 能级的能量差；垂直束流方向的反冲离子动量称为横向动量，与散射离子的散射角相关。

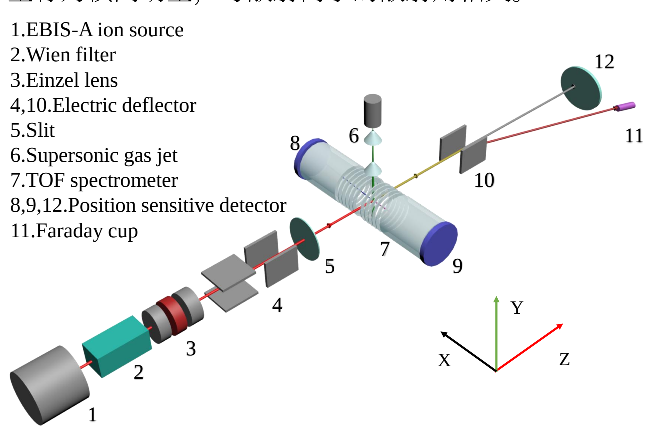


图 1　(在线彩图) 实验装置示意图

3 结果与讨论

正如实验装置部分所述，对纯电子俘获过程，反应显微成像谱仪收集的数据经过分析后获取的信息主要有能量损失谱和角分布；能量损失谱揭示了炮弹俘获电子布居态的信息，角分布则反应了电子俘获的动力学信息。小角度散射近似下，根据碰撞反应前后动量和能量守恒，单电子俘获过程的能量损失 Q 值与反冲离子纵向动量 P_z 有如下关系 (除非有特殊说明，否则下面的讨论都是在原子单位下进行的)：

$$Q = -v_p \cdot P_z - \frac{nv_p^2}{2} \tag{1}$$

其中 v_p 是炮弹速度，n 是俘获电子数目。在小角度近似下，反冲离子横向动量 P_t 和炮弹散射角 θ 的关系如下：

$$\theta = P_t/P_0 \tag{2}$$

其中 P_0 是炮弹初始动量。

3.1 能量损失谱

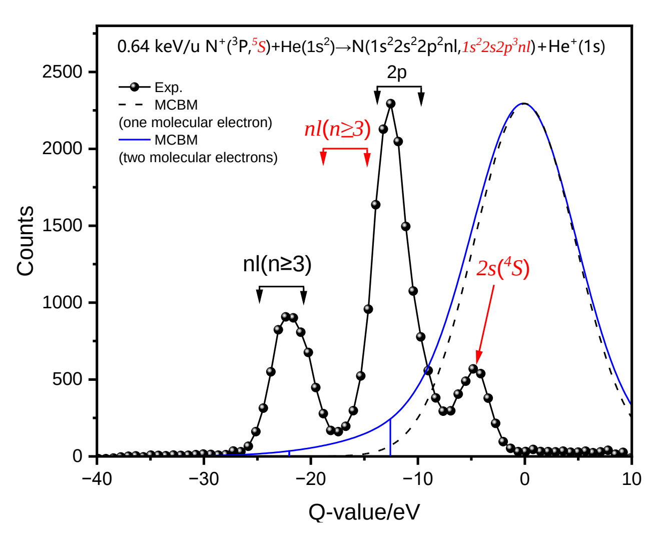


图 2　(在线彩图) 0.64 keV/u N^+ 与 He 碰撞中单电子俘获反应的 Q 值谱

图2展示了 0.64 keV/u N^+ 与 He 碰撞中单电子俘获反应的 Q 值谱，其中点实线是实验结果，从图中可以看到：最右边的峰对应一个末态为单态（^4S）的通道，它的半高全宽反映了实验的能量分辨，约为 1.4 eV。实线是考虑双分子化电子的分子过垒模型[15] 预测的结果，虚线是考虑单分子化电子的结果；图2上方是单电子俘获过程的反应方程式，nl 对应每个峰上方的标识，正体标识代表基态炮弹俘获过程，斜体标识代表亚稳态炮弹俘获过程。从图中可以看到：参与俘获反应的主要是基态炮弹 $N^+(1s^22s^22p^2\ ^3P)$ 和亚稳态炮弹 $N^+(1s^22s2p^3\ ^5S)$ (亚稳态寿命约 5.4 ms[16]，离子从离子源到达碰撞区大

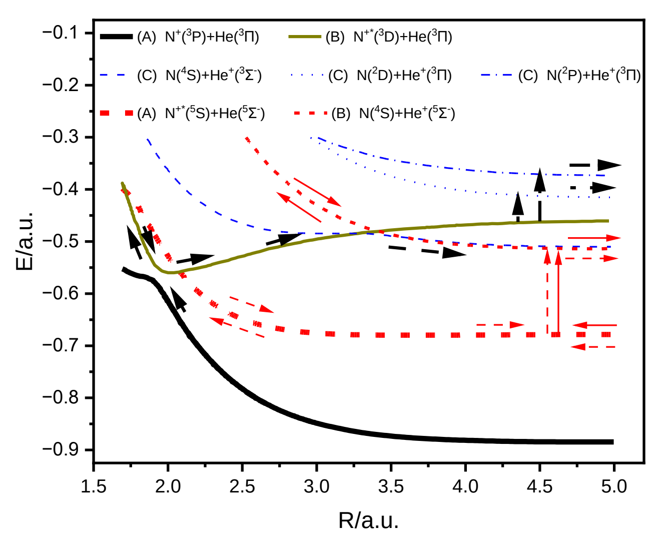


图 3　(在线彩图) 准分子离子 NHe⁺ 势能曲线[14]

约 6 μs)；对于基态炮弹，单电子俘获过程最主要的贡献是炮弹 $N^+(1s^22s^22p^2\ ^3P)$ 俘获 He 原子的一个 1s 电子到 2p 壳层形成 $N(1s^22s^22p^3)$ 散射离子，次要贡献是炮弹 $N^+(1s^22s^22p^2\ ^3P)$ 俘获 He 原子的一个 1s 电子到更高 *nl* 壳层。对于亚稳态炮弹，单电子俘获过程最主要的贡献是炮弹 $N^+(1s^22s2p^3\ ^5S)$ 俘获 He 原子的一个 1s 电子到 2s 壳层形成 $N(1s^22s^22p^3\ ^4S)$ 态，几乎没有俘获到更高壳层的贡献。我们根据文献[11] 中给出的 $N^+(^5S)$ 和 $N^+(^3P)$ 炮弹与 He 靶单电子俘获的总截面，结合实验测到的基态和亚稳态炮弹俘获后的计数比值，得到了炮弹中亚稳态 ^5S 的占比约为 5%，该方法在之前的相同质荷比混合束 (C^{3+} 和 O^{4+} 混合束，其质量电荷比均为 4) 中确定 C^{3+} 离子束占比的工作中已报导[17]。

图3是文献[14] 计算得到的准分子离子 NHe⁺ 的势能曲线 (部分)，其中有三种粗细程度，由粗到细标记为 A 类，B 类，C 类。在准分子图像下，A 类实线对应基态炮弹和 He 形成的准分子离子势能曲线，B 类实线对应激发态炮弹 $N^+(^3D)$ 和 He 的势能曲线，A 类点线对应亚稳态炮弹 $N^+(1s^22s2p^3\ ^5S)$ 和 He 的势能曲线；由于跃迁选择定则的限制，C 类线对应基态炮弹可能的末态通道，B 类点线对应亚稳态炮弹可能的末态通道，详细细节见图3中图例所示。为了更方便说明，图中标注了一些引导箭头，粗箭头代表基态炮弹的俘获过程中势能的可能变化路径，其代表的可能路径如下：基态炮弹 $N^+(1s^22s^22p^2\ ^3P)$ 俘获 He 的一个 1s 电子到 2p 壳层形成 $N(1s^22s^22p^3\ ^4S)$ 的过程，基态炮弹首先会在核间距 2 a.u. 左右 (避免交叉点) 与靶原子有一个碰撞激发过程，基态炮弹被激发到 ^3D 态，在 3 a.u. 左右会有较高的几率跃迁到基态 ^4S[11](由于 B 类实线和 C 类虚线有一个实的交叉点)；而后续的布居到 ^2D 和 ^2P 的跃迁由于没有避免交叉点和实交叉点的存在，这会阻碍类似俘获到 ^4S 的径向耦合路径的发生[14]；该过程可能是由于旋转耦和导致的，也可能是由于在核间距较远处发生的微扰对称电子跃迁过程，也称为 Demkov 型跃迁[18-19] 导致的，这种跃迁往往对应着角微分截面的振荡。细箭头代表亚稳态炮弹 $N^+(1s^22s2p^3\ ^5S)$ 的俘获过程中势能的可能变化路径。$N^+(1s^22s2p^3\ ^5S)$ 炮弹直接俘获 He 的一个 1s 电子到 2s 壳层形成 $N(1s^22s^22p^3\ ^4S)$ 的过程 (A 类点线和 B 类点线) 同样没有避免交叉点和实交叉点的存在，相似的旋转耦和及 Demkov 型跃迁过程可能发生；在现在的实验分辨下，该过程呈现出一个独立的峰，更多解释会在后面的角分布讨论部分给出。

总的来说，基态炮弹俘获单电子到 ^4S 态是一种径向耦合机制，而基态炮弹俘获到 ^2D、^2P 和亚稳态炮弹俘获到基态 ^4S 很可能是 Demkov 型机制起主导，对该机制的进一步研究需要更多的实验和理论研究。

3.2　角微分截面

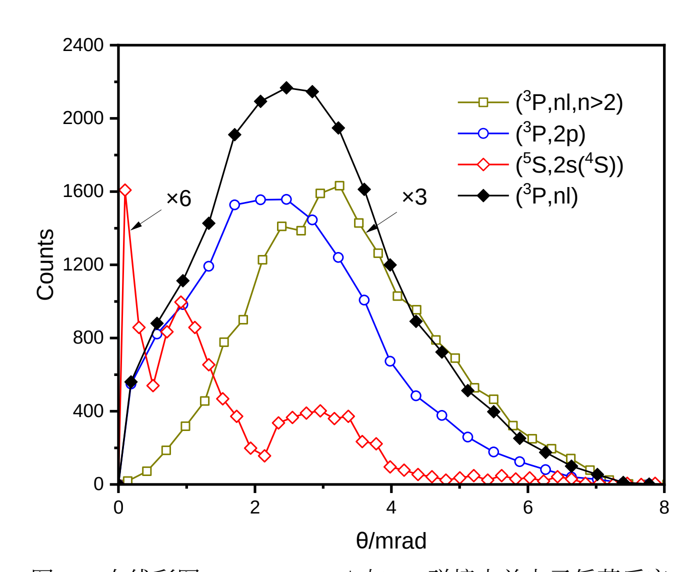


图 4　(在线彩图) 0.64 keV/u N⁺ 与 He 碰撞中单电子俘获反应的角分布

图4给出了 0.64 keV/u N⁺ 与 He 碰撞中单电子俘获反应的角微分截面，其中黑色点实线是总的角微分截面，红色是亚稳态炮弹俘获到基态通道的角微分截面，蓝色和绿色分别是基态炮弹俘获到基态和更高壳层的角微分截面。红色实线出现了明显的振荡现象，一种振荡机制可能是前面提到的 Demkov 型跃迁机制，Demkov 型跃迁的一般特点有[19]：角微分截面出现振荡，发生跃迁时的核间距较大，随碰撞能量的增加跃迁几率往往会变大以及准分子图像下的绝热势能曲线往往没有避免交叉点和实交叉点等。而根据文献[11] 的结果，该通道的态选择截面随能量的变化与 Demkov 机制是一致的；从图3中可以看到，入射通道和出射通道的势能曲线没有避免交叉

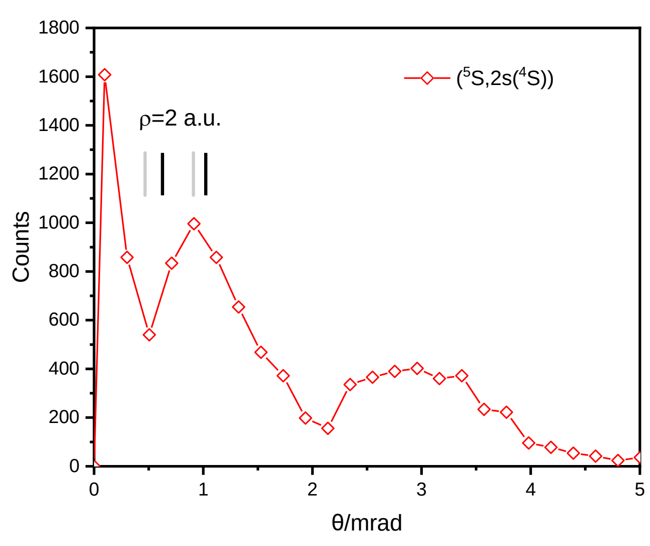


图 5 (在线彩图) 夫朗禾费衍射计算结果

点以及实交叉点；而我们的实验结果也显示该通道的角微分截面有很强的振荡现象。另一种可能的机制是炮弹离子物质波在靶原子上的夫琅禾费衍射[20-24]，该机制主要出现在 s-s 通道电荷转移。这个机制首先是由 M. van der Poel[20] 通过低能 Li^+ 离子和 Na 靶的单电子俘获研究提出的，该机制对实验结果进行了很好的解释。后来 Agueny[23] 从理论角度出发，计算了 ^3He 离子与 He 和质子与 He 的电荷转移角微分截面，与已有的实验符合很好[25]。Wang 等人[22] 成功应用于解释 He^{2+} 和 He 的单电子俘获过程，Guo 等人[24] 用于解释 C^{4+} 和 He 的单电子俘获过程。类比于光学的夫琅禾费衍射，对于一个约化质量为 μ，速度为 υ 的离子与原子碰撞的 s-s 通道电子俘获，在 Eikonal 近似下的俘获微分截面有下面的近似形式：

$$\sigma(\theta) = k^2 \left| \int_0^\infty d b \, b J_0(kb\theta) a(b) \right|^2 \tag{3}$$

其中 $k = 2\pi/\lambda_{dB} = \mu\upsilon/\hbar$，$\lambda_{dB}$ 是物质波波长，$a(b)$ 是该通道的散射振幅，J_0 是贝塞尔函数。对于本体系的 s-s 通道转移，利用两态模型[22]，考虑入射和出射通道的极化效应，计算的相互作用区的最大值约为 2 a.u.。根据这个相互作用区最大值，我们计算得到了如图5中的一组明暗相间的条纹（黑色部分），其中黑色竖直线代表“小孔”半径为 2 a.u. 的计算结果，可以看到第一条暗条纹与实验结果对应，而其他条纹与实验结果不符，这表明了该机制对实验结果可能有贡献，但是并不是引起振荡的主要原因。综上所述，亚稳态炮弹俘获到基态通道的角微分截面的振荡现象很有可能是 Demkov 机制导致的。

4 结论

借助反应显微成像谱仪，测量了 0.64 keV/u N^+-He 碰撞过程单电子俘获的态选择截面和角微分截面。能量损失谱显示，基态炮弹俘获 He 原子的 1s 电子到 2p 壳层是主要的反应通道，同时观测到俘获到更高 *nl* 壳层的贡献；亚稳态炮弹 $N^+(1s^22s2p^3\ ^5S)$ 俘获 He 原子的 1s 电子到 2s 壳层是主要的贡献，几乎看不到俘获到更高 *nl* 壳层的贡献。通过各个通道的角微分截面可以看到：基态炮弹俘获 He 的 1s 电子到 2p 壳层偏向小角度贡献，俘获到 3s 及更高壳层偏向于大角度贡献；亚稳态入射离子 $N^+(1s^22s2p^3\ ^5S)$ 俘获 He 原子的 1s 电子到 2s 壳层偏向小角度且出现了振荡现象。研究表明基态炮弹俘获单电子到 ^4S 态是一种径向耦合机制，而基态炮弹俘获到 ^2D、^2P 和亚稳态炮弹俘获到 ^4S 基态很可能来自 Demokov 跃迁，对该机制的进一步研究需要更多的实验和理论研究。

参考文献

[1] KALLMAN T R, MCCRAY R. The Astrophysical Journal Supplement Series, 1982, 50: 263. doi: 10.1086/190828.

[2] BUTLER S E, RAYMOND J C. The Astrophysical Journal, 1980, 240: 680. doi: 10.1086/158274.

[3] STANCIL P C, ZYGELMAN B, CLARKE N J, et al. Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics, 1997, 30(4): 1013. doi: 10.1088/0953-4075/30/4/020.

[4] SHULL J M, MCKEE C F. The Astrophysical Journal, 1979, 227: 131. doi: 10.1086/156712.

[5] VUJOVIC M, MATIC M, COBIC B, et al. Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics, 1977, 10(18): 3699. doi: 10.1088/0022-3700/10/18/026.

[6] VUJOVIC M, MATIC M, COBIC B, et al. Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics, 1972, 5(11): 2085. doi: 10.1088/0022-3700/5/11/014.

[7] MORAN T F, WILCOX J B. The Journal of Chemical Physics, 1979, 70(3): 1467. doi: 10.1063/1.437585.

[8] NUTT W L, MCCULLOUGH R W, GILBODY H B. Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics, 1979, 12(5): L157. doi: 10.1088/0022-3700/12/5/005.

[9] MCAFEE K B, SZMANDA C R, HOZACK R S. Phys Rev A, 1987, 36: 2056. doi: 10.1103/PhysRevA.36.2056.

[10] KUSAKABE T, MIZUMOTO Y, KATSURAYAMA K, et al. Journal of the Physical Society of Japan, 1990, 59(6): 1987. doi: 10.1143/JPSJ.59.1987.

[11] KIMURA M, GU J P, HIRSCH G, et al. Phys Rev A, 1995, 51: 2063. doi: 10.1103/PhysRevA.51.2063.

[12] ZHU X L, MA X, LI J Y, et al. Nucl Instr and Meth B, 2019, 460: 224. doi: https://doi.org/10.1016/j.nimb.2018.11.047.

[13] XU, Chuanxi and XU, Jiawwi and ZHU, Xiaolong, et al. Nuclear Physics Review, 2021, 38(4): 452-457. (in Chinese) doi: 10.11804/NuclPhysRev.38.2021024
(许传喜, 徐佳伟, 朱小龙, 等. 原子核物理评论, 2021, 38: 452.)

[14] GU J P, BUENKER R J, HIRSCH G, et al. The Journal of Chemical Physics, 1995, 102(19): 7540. doi: 10.1063/1.469085.

[15] NIEHAUS A. Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics, 1986, 19(18): 2925. doi: 10.1088/0022-3700/19/18/021.

[16] CALAMAI A G, JOHNSON C E. Phys Rev A, 1991, 44: 218. doi: 10.1103/PhysRevA.44.218.

[17] ZHU X, WEN W, MA X, et al. Nucl Instr and Meth A, 2014, 764: 232. doi: 10.1016/j.nima.2014.06.067.

[18] DEMKOV Y N. Sov phys JETP, 1964, 18: 1. http://jetp.ras.ru/cgi-bin/dn/e_018_01_0138.pdf.

[19] KIMURA M, LANE N F. [M/OL]//BATES S D, BEDERSON B. Advances In Atomic, Molecular, and Optical Physics: volume 26 The Low-Energy, Heavy-Particle Collisions−A Close-Coupling Treatment. Academic Press, 1989: 79. doi: https://doi.org/10.1016/S1049-250X(08)60061-0.

[20] VAN DER POEL M, NIELSEN C V, GEARBA M A, et al. Phys Rev Lett, 2001, 87: 123201. doi: 10.1103/PhysRevLett.87.123201.

[21] NIELSEN S E, ROD T H, SALGADO J, et al. Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics, 2004, 37(10): 2119. doi: 10.1088/0953-4075/37/10/009.

[22] Q W, X M, ANDZHANG S F Z X L. Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics, 2011, 45(2): 025202. doi: 10.1088/0953-4075/45/2/025202.

[23] AGUENY H. Phys Rev A, 2015, 92: 012702. doi: 10.1103/PhysRevA.92.012702.

[24] GUO D L, GAO J W, ZHANG S F, et al. Phys Rev A, 2021, 103: 032827. doi: 10.1103/PhysRevA.103.032827.

[25] SCHÖFFLER M S, TITZE J, SCHMIDT L P H, et al. Phys Rev A, 2009, 79: 064701. doi: 10.1103/PhysRevA.79.064701.

State-selective single electron capture in slow N^+-He collisions

Xing Dadi[1, 2], Cui Shucheng[1, 2], Zhu Xiaolong[2, 3], Zhang Denghong[1], Zhang Shaofeng[2, 3], Ma Xinwen[2, 3]

(*1. Key Laboratory of Atomic and Molecular Physics Functional Material of Gansu Province, College of Physics and Electronic Engineering, Northwest Normal University, Lanzhou 730070, China ;*
2. Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China;
3. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract: The state-selective single-electron capture process in the collision of N^+ ions with He at an energy of 0.64 keV/u has been experimentally studied by the reaction microscopy with a two-fold coincident method, and the state-selective cross-sections and angular distributions of an electron captured into different quantum states of the projectile ions have been obtained. The experimental results show that: the ground state projectile $N^+(^3P)$ captures a 1s electron from the He target mainly to the 2p shell, and the contribution to the higher shells can also be observed; the metastable $N^+(^5S)$ captures a 1s electron from the He target mainly to the 2s shell, with almost no contribution to higher shells. The experimental results are interpreted qualitatively using the potential energy curves of the NHe^+ quasimolecular ion, but the reaction window predictions of the molecular Coulomb over-barrier model differ significantly from the experiments. During the capture of the target electron into the 2s orbital by the metastable projectile $N^+(^5S)$, a clear oscillatory structure appears in the angular differential cross-section, which is likely to result from Demkov-type transitions.

Key words: single-electron capture; state-selective cross-sections; angular differential cross-sections; metastable states; ion-atom collisions

Received date: XX XXXXX. 2024; **Revised date:** xx xxXXX. 2024

Foundation item: The National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11974358 and 11934004), the National Key Research and Development Program of China (Grant No. 2022YFA1602500), and Strategic Key Research Program of the Chinese Academy of Sciences (XDB34020000).

Corresponding author: Zhu Xiaolong, E-mail: zhuxiaolong@imp.ac.cn

Corresponding author: Zhang Denghong, E-mail: zhangdh@nwnu.edu.cn